

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

PCT/IPCG/07982  
09/869884

09.03.01

J#00/7982 #5

REC'D 12 MAR 2001

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年11月12日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第322448号

出 願 人

Applicant (s):

鐘淵化学工業株式会社

EJKU

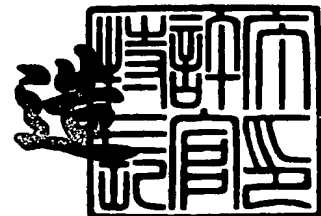
PRIORITY  
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 4月13日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3029123

【書類名】 特許願

【整理番号】 A009906319

【提出日】 平成11年11月12日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B29D 7/01  
B29D 11/00

【発明の名称】 光学フィルム

【請求項の数】 8

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府摂津市鳥飼西 5 - 1 - 1

【氏名】 疋田 敏彦

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市北区筑紫が丘 8 - 4 - 9

【氏名】 藤井 貞男

【特許出願人】

【識別番号】 000000941

【氏名又は名称】 鐘淵化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100058479

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】 100084618

【弁理士】

【氏名又は名称】 村松 貞男

【選任した代理人】

【識別番号】 100068814

【弁理士】

【氏名又は名称】 坪井 淳

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100088683

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 誠

【選任した代理人】

【識別番号】 100109830

【弁理士】

【氏名又は名称】 福原 淑弘

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9902539

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 光学フィルム

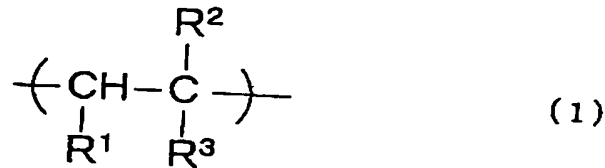
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する光学フィルム。

【請求項 2】 光線透過率が 80% 以上である透明性を有することを特徴とする請求項 1 記載の光学フィルム。

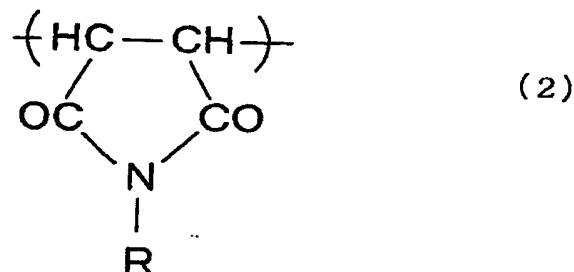
【請求項 3】 (A) の熱可塑性樹脂が、下記式 (1) で表される繰り返し単位と下記式 (2) で表される繰り返し単位を含有することを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の光学フィルム。

【化 1】



(ここで、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  および  $\text{R}^3$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1～8 のアルキル基を示す。)

【化 2】



(ここで、 $\text{R}$  は、炭素数 1～18 のアルキル基、または炭素数 3～12 のシクロアルキル基を示す。)

【請求項 4】 (B) の熱可塑性樹脂が、置換または非置換スチレン単位と

、置換または非置換アクリロニトリル単位を含有することを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれか 1 項に記載の透明フィルム。

【請求項 5】 請求項 4 記載のフィルムを少なくとも一軸に延伸してなることを特徴とする位相差フィルム。

【請求項 6】 請求項 5 記載の位相差フィルムを少なくとも一枚用いた位相差フィルムであって、位相差が 5 5 0 n m の単色光に対して 9 0 n m から 1 0 0 0 n m であることを特徴とする位相差フィルム。

【請求項 7】 請求項 5 または 6 記載の位相差フィルムと偏光板が積層一体化されていることを特徴とする楕円偏光板。

【請求項 8】 請求項 5 または 6 記載の位相差フィルムと偏光板が積層一体化されていることを特徴とする円偏光板。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0 0 0 1】

##### 【発明の属する技術分野】

本発明は光学特性に優れた、新規な光学フィルムに関する。

##### 【0 0 0 2】

##### 【従来の技術】

代表的に反射型 T F T 液晶表示装置に見られるように、近年、位相差フィルムは液晶表示装置に広く使用されている。位相差フィルムとしては、一般に、ポリカーボネートフィルムが使用されている。

##### 【0 0 0 3】

位相差フィルムの用途はさらに広がっており、それにつれてより高度な機能が要求されてきている。それら要求のうち特に重要なものとして、位相差の波長依存性が小さいことが要求されている。この位相差の波長依存性は、 $Re(400)/Re(550)$  で定義され、ここで、 $Re(400)$  は、波長 4 0 0 n m の単色光で測定したフィルムの位相差を表し、 $Re(550)$  は、波長 5 5 0 n m の単色光で測定したフィルムの位相差を表す。

##### 【0 0 0 4】

一方、1 / 4 波長板や 1 / 2 波長板として使用される用途では、フィルムは、

可視光の各波長に対してすべて  $1/4$  波長あるいは  $1/2$  波長に相当する位相差を有することが望ましい。しかし、ポリカーボネート位相差フィルムでは、波長依存性が大きく、波長により偏光の程度が異なる。そのため、このような波長依存性の大きい位相差フィルム使った反射型 TFT 液晶表示装置で黒表示をする場合、バックライトからの光を完全に遮光することができないため、コントラストや階調表示の低下を招いてしまう。

#### 【0005】

これに対して、例えば、特開平 5 - 2 7 1 1 8 号公報、特開平 5 - 2 7 1 1 9 号公報、特開平 5 - 1 0 0 1 1 4 号公報および特開平 1 0 - 6 8 8 1 6 号公報では、2 枚の位相差フィルムを所定の角度で貼合することによりポリカーボネートフィルムでも波長依存性の小さな位相差フィルムができるとしている。

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述した方法をポリカーボネート位相差フィルムに適用した場合、次のような問題点がある。ポリカーボネートはもともと位相差が生じ易いため、位相差フィルムを製造する際の延伸工程において、張力のわずかな振れにより位相差のバラツキが生じやすい。さらにこのような位相差フィルムを貼合する場合、貼合時の張力により所望する位相差がずれてしまうばかりでなく、貼合後の偏光板の収縮等により、位相差値が変化してしまう。

#### 【0007】

従って、本発明は、位相差の波長依存性が小さく、応力による位相差ズレの小さい位相差フィルムを生成し得る光学フィルムを提供することを目的とする。

#### 【0008】

##### 【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明者等は、鋭意研究した結果、特定の構造を有する少なくとも 2 種の樹脂、すなわち側鎖にイミド基（置換または非置換イミド基）を有する熱可塑性樹脂、および側鎖にフェニル基（置換または非置換フェニル基）とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物から作られたフィルムが所期の目的を達成できることを見だし、本発明に至った。



【 0 0 0 9 】

すなわち、本発明は、（A）側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および（B）側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する光学フィルムを提供する。

【 0 0 1 0 】

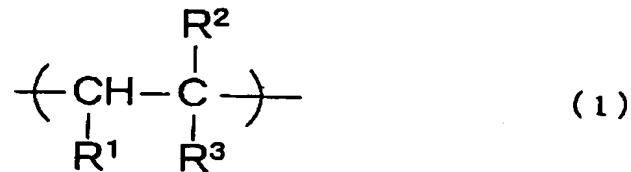
本発明の光学フィルムは、光線透過率が 8 0 % 以上である透明性を有することが好ましい。

【 0 0 1 1 】

好ましくは、（A）の熱可塑性樹脂は、下記式（1）で表される繰り返し単位と下記式（2）で表される繰り返し単位を含有する。

【 0 0 1 2 】

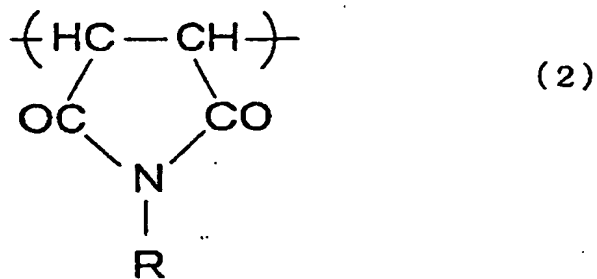
【化 3】



【 0 0 1 3 】

（ここで、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  および  $\text{R}^3$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示す。）

【化 4】



【 0 0 1 4 】

(ここで、Rは、炭素数1～18のアルキル基、または炭素数3～12のシクロアルキル基を示す。)

また、好ましくは、(B)の熱可塑性樹脂は、置換または非置換スチレン単位と、置換または非置換アクリロニトリル単位を含有する。

【0015】

本発明は、他の側面において、本発明の光学フィルムを少なくとも一軸に延伸して得られる位相差フィルムを提供する。

【0016】

本発明のさらに他の側面によれば、本発明の位相差フィルムを少なくとも一枚用いた位相差フィルムであって、位相差が550nmの単色光に対して90nmから1000nmであることを特徴とする位相差フィルムが提供される。

【0017】

さらにまた、本発明によれば、本発明の位相差フィルムと偏光板が積層されて一体化された楕円偏光板もしくは円偏光板を提供する。

【0018】

【発明の実施の形態】

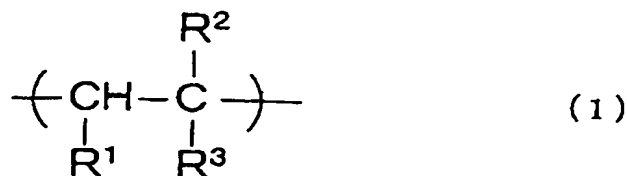
本発明の光学フィルムは、(A)側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および(B)側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物から作られる。

【0019】

本発明に用いられる熱可塑性樹脂(A)は、好ましくは、少なくとも1種のオレフィン(アルケン)から誘導される繰り返し単位と少なくとも1種の置換あるいは非置換マレイミド構造を有する繰り返し単位とを含有する共重合体(二元もしくはそれ以上の多元共重合体)である。特に好ましくは、熱可塑性樹脂(A)は、下記式(1)で表される繰り返し単位と下記式(2)で表される繰り返し単位を含有する。

【0020】

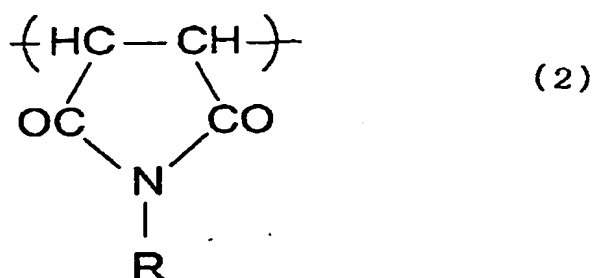
【化 5】



【0 0 2 1】

(ここで、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  および  $\text{R}^3$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示す。)

【化 6】

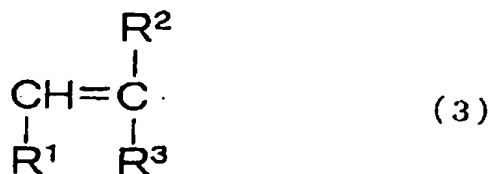


【0 0 2 2】

(ここで、 $\text{R}$  は、水素、炭素数 1 ～ 1 8 のアルキル基、または炭素数 3 ～ 1 2 のシクロアルキル基を示し、好ましくは、炭素数 1 ～ 1 8 のアルキル基、または炭素数 3 ～ 1 2 のシクロアルキル基を示す。)

式 (1) の繰り返し単位 (オレフィン単位) を提供するオレフィン、下記式 (3) :

【化 7】



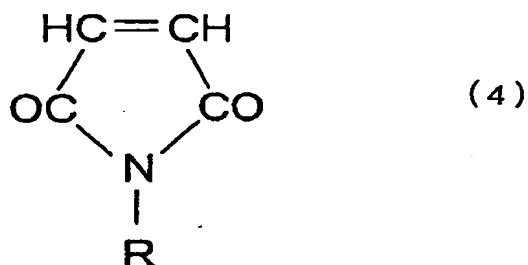
【0023】

(ここで、 $R^1$ 、 $R^2$  および  $R^3$  は、式 (1) に同じ。) で表される。そのようなオレフィンの好ましい例を挙げると、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、1-メチル-1-ヘブテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-エチル-2-ブテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン等である。これらオレフィン、単独で、あるいは2種以上組合せて用いることができる。

【0024】

上記式 (2) の繰返し単位 (マレイミド単位) は、対応するマレイミド化合物から誘導することができる。そのようなマレイミド化合物は、下記式 (4) :

【化 8】



【0025】

(ここで、Rは、式 (2) に同じ。) で表される。そのようなマレイミド化合物の好ましい例を挙げると、マレイミド、並びにN-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-n-プロピルマレイミド、N-i-プロピルマレイミド、N-n-ブチルマレイミド、N-i-ブチルマレイミド、N-s-ブチルマレイミド、N-t-ブチルマレイミド、N-n-ペンチルマレイミド、N-n-ヘキシルマレイミド、N-n-ヘプチルマレイミド、N-n-オクチルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、N-ステアリルマレイミド、N-シクロプロピルマレイミド、N-シクロブチルマレイミド、N-シクロペンチルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド、N-シクロヘプチルマレイミド、N-シクロオクチルマレイミド等のN-置換マレイミドである。これらマレイミド化合物は、単独で、

または2種以上を組み合わせる用いることができる。マレイミド化合物としては、N-置換マレイミド（式（4）において、Rが水素以外の基）が特に好ましい。

【0026】

本発明の熱可塑性樹脂（A）は、上記オレフィンとマレイミド化合物とをそれぞれ自体既知の重合方法により重合させることにより製造することができる。この重合には、グラフト重合も含まれる。あるいは、本発明の熱可塑性樹脂（A）は、上記オレフィンとマレイン酸とを常法に従って重合させて前駆重合体を製造し、これにアミン化合物を反応させて前駆重合体のマレイン酸部位をイミド化させることによっても製造することができる。その場合に使用するアミン化合物としては、上記式（2）のマレイミド単位におけるイミド部位に対応するアミンが含まれ、より具体的には、式 $R-NH_2$ （ただし、Rは、式（2）に同じ。）で表されるアミン化合物、例えばメチルアミン、エチルアミン、n-プロピルアミン、i-プロピルアミン、n-ブチルアミン、s-ブチルアミン、t-ブチルアミン、シクロヘキシルアミン等のアルキルアミンやアンモニアの他、ジメチル尿素、ジエチル尿素等を好ましく例示することができる。この場合にも、上記式（1）の繰り返し単位と式（2）の繰り返し単位を有する共重合体を得られる。

【0027】

本発明の熱可塑性共重合体（A）は、上記オレフィン単位とマレイミド単位以外に、第3成分として、他の共重合性単量体を1種以上含有することができる。そのような共重合性単量体には、アクリル酸メチルやアクリル酸ブチルのようなアクリル酸エステル単量体、メタクリル酸メチルやメタクリル酸シクロヘキシルのようなメタクリル酸エステル単量体、酢酸ビニル等のビニルエステル単量体、メチルビニルエーテルのようなビニルエーテル単量体等のビニル単量体、並びに無水マレイン酸のような不飽和二重結合を有する酸無水物等が含まれる。これら第3成分は、2種以上を組み合わせる用いることができる。第3成分を光学的特性を損なわない程度に含有させることにより、熱可塑性共重合体（A）の耐熱性を向上させたり、機械的強度を増大させたりすることができる。

【0028】

本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体、交互共重合体のいずれであってもよいが、交互共重合体であることが好ましい。本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、より好ましくは、マレイミド単位として、式 (2) における R がメチル基、エチル基、イソプロピル基およびシクロヘキシル基から選ばれたアルキル基である少なくとも 1 種のマレイミド単位を含有し、オレフィン単位として、式 (1) における  $R^1$  が水素であり、 $R^2$  および  $R^3$  がそれぞれメチル基である少なくとも 1 種のオレフィン単位を含有する共重合体である。さらに好ましくは、本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、マレイミド単位として N-メチルマレイミド単位を含有し、オレフィン単位としてとイソブチレン単位を含有する。本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、N-置換マレイミドとイソブテンとの交互共重合体であることが特に好ましい。

## 【0029】

本発明の熱可塑性共重合体 (A) において、マレイミド単位の含有率は、30 モル%以上 80 モル%未満であることが好ましい。マレイミド単位の含有率がこの範囲を逸脱すると、得られる位相差フィルムの耐熱性や機械的強度が損なわれるおそれがある。マレイミド単位の含有率は、より好ましくは、40 モル%以上 60 モル%以下である。第 3 成分は、これを添加する場合には、その含有率が 5 モル%以上 30 モル%以下であることが好ましい。熱可塑性共重合体 (A) の残りは、オレフィン単位である。本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、マレイミド単位とオレフィン単位とを主成分（好ましくは、マレイミド単位とオレフィン単位との合計が、熱可塑性共重合体 (A) の 70 モル%以上）として含むことが特に好ましい。また、本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、 $1 \times 10^4$  以上  $1 \times 10^5$  以下の重量平均分子量を有することが好ましい。

## 【0030】

さらに、本発明の熱可塑性共重合体 (A) は、ガラス転移温度が好ましくは 80℃以上、より好ましくは 100℃以上、さらに好ましくは 130℃以上であるような耐熱性を示すことが好ましい。

## 【0031】

本発明のオレフィン-マレイミド共重合体は、既述のようにそれ自体既知の方

法で製造することができ、例えば特開平 5 - 5 9 1 9 3 号公報、特開平 5 - 1 9 5 8 0 1 号公報、特開平 6 - 1 3 6 0 5 8 号公報および特開平 9 - 3 2 8 5 2 3 号公報に記載されているように、オレフィンとマレイミド化合物とを直接共重合させたり、その一方の重合体に他方をグラフト共重合したり、あるいは前述した前駆重合体に対してアミン化合物を反応させてイミド結合を導入することによって製造することができる。

## 【 0 0 3 2 】

次に、本発明に用いられる熱可塑性樹脂 (B) は、好ましくは、不飽和ニトリル化合物から誘導される繰り返し単位 (ニトリル単位) とスチレン系化合物から誘導される繰り返し単位 (スチレン系単位) とを含む共重合体 (二元もしくは以上の多元共重合体) である。

## 【 0 0 3 3 】

上記の好ましい共重合体 (B) を構成する不飽和ニトリル化合物の好ましい例を挙げると、アクリロニトリルやメタクリロニトリルのような  $\alpha$  - 置換不飽和ニトリル、フマロニトリルのような  $\alpha$  ,  $\beta$  - 二置換オレフィン性不飽和結合を有するニトリル化合物である。

## 【 0 0 3 4 】

上記の上記好ましい共重合体 (B) を構成するスチレン系化合物としては、スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレンまたはクロロスチレン等の非置換または置換スチレン系化合物や、 $\alpha$  - メチルスチレン等の  $\alpha$  - 置換スチレン系化合物を用いることができる。

## 【 0 0 3 5 】

本発明の熱可塑性共重合体 (B) は、上記ニトリル単位とスチレン系単位以外に、第 3 成分として、他の共重合性単量体を含有していてもかまわない。そのような第 3 成分には、好ましくは、ブチルアクリレート等のアクリル系単量体、エチレンやプロピレン等のオレフィン系単量体が含まれ、これら単量体を 1 種または 2 種以上を共重合させることにより、得られたフィルムの可撓性を向上させることができる。また、第 3 成分としては、N - 置換マレイミドを用いることもでき、この N - 置換マレイミド、特にフェニルマレイミドを共重合成分として用い

ることにより、当該共重合体の耐熱性を向上させることができる。

【0036】

本発明の熱可塑性共重合体（B）は、これら単量体を直接共重合させることにより得られるが、スチレン系化合物の重合体および不飽和ニトリル化合物の重合体の一方に、他方をグラフト共重合させてもよい。また、ゴム弾性を有するアクリル系重合体にスチレン系化合物および不飽和ニトリル系化合物をグラフト重合させることにより好ましい共重合体を得ることができる。特に好ましい熱可塑性共重合体は、不飽和ニトリル成分としてアクリロニトリルを含有し、スチレン系成分としてスチレンを含有する共重合体である。これら共重合体はA S樹脂やA A S樹脂として知られている。

【0037】

本発明の熱可塑性共重合体（B）において、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位の比率は、好ましくは、前者が20～60モル%であり、後者が40～80モル%であり、より好ましくは、前者が20～50モル%であり、後者が50～80モル%である。スチレン系化合物やニトリル系化合物の成分がこの範囲を超えると、得られたフィルムを延伸して位相差フィルムとした場合、所望とする波長依存性の低い位相差フィルムを得ることができないおそれがある。第3成分は、これを添加する場合は、熱可塑性共重合体（B）中の含有率は5モル%以上、30モル%以下であることが好ましい。本発明の熱可塑性共重合体（B）は、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位とを主成分（好ましくは、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位との合計が、熱可塑性共重合体（B）の70モル%以上）として含むことが特に好ましい。また、本発明の熱可塑性共重合体（B）は、1万ないし50万の重量平均分子量を有することが好ましい。

【0038】

本発明の光学フィルムは、以上述べた熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）を単に混合することにより得られる樹脂組成物、または両樹脂を熱溶融混練して得られる樹脂組成物から作ることができる。これらの樹脂組成物は、必要に応じて、可塑剤、熱安定剤、紫外線吸収剤やフィラー等の公知の添加剤やその他の重合体を含有してもよい。本発明の光学フィルムは、光線透過率が80%以上で



あるという優れた透明性を示す。特に、イソブチレンとN-メチルマレイミドとを主成分として含む共重合体（A）と、アクリロニトリルとスチレンとを主成分として含む共重合体（B）とは、驚くべきことに、広い配合割合で良好な相溶性を示し、フィルムとした場合、全光線透過率で85%以上という高透明性を有し、かつヘイズが2%以下である光学フィルムを提供することができる。また、イソブチレン-置換マレイミド系共重合体（A）からなるフィルムは可撓性が乏しく裂けやすいという欠点を有するが、アクリロニトリル-スチレン系共重合体（B）をブレンドすることにより、フィルムの機械的特性を向上させることができる。

## 【0039】

位相差フィルムとして用いる場合において、熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）は、前者60～95重量%に対して、後者5～40重量%の割合で配合することが好ましい。熱可塑性樹脂（A）が5重量%より少ないと、位相差フィルムにした場合、位相差の波長依存性が大きくなるおそれがある。また、熱可塑性樹脂（A）の配合率が40重量%を越えると、フィルムを延伸しても位相差が発現しにくくなり、必要とする位相差を有する位相差フィルムを得ることが困難となるおそれがある。両樹脂（A）および（B）を上記割合で配合することにより、延伸により位相差を発現しやすく、しかも応力の変化に対して位相差の変化しにくいフィルムとすることができる。熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）は前者65～90重量%に対して、後者10～35重量%の割合で配合することが特に好ましい。

## 【0040】

本発明の位相差フィルムを得るには、熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）を含有する樹脂組成物をフィルム化した後、得られたフィルムを適当な方法で延伸すればよい。

## 【0041】

位相差のバラツキの小さい位相差フィルムを得るには、延伸するフィルムが光学的に均一であることが重要である。上記樹脂組成物をフィルム化するためには、公知の方法、例えば、溶融押出し法、インフレーション法、溶液流延法等のい

ずれをも採用することができるが、溶液流延法が特に好ましい。この方法により、ダイライン等の欠陥がなく、フィルム厚みのバラツキが5%以下と小さく、また位相差の小さい光学的に等方なフィルムを得ることができる。

#### 【0042】

溶液流延法に用いることのできる溶剤は、樹脂材料（樹脂（A）および（B））の種類に応じて、公知の溶剤から選択される。塩化メチレンやトリクロロエタン等のハロゲン化炭化水素系溶剤は樹脂材料を溶解しやすく、また沸点も低いいため好適な溶剤の一つである。また、ジメチルホルムアミドやジメチルアセトアミド等の極性の高い非ハロゲン系の溶剤も用いることができる。さらに、トルエン、キシレンやアニソール等の芳香族系や、ジオキサン、ジオキソラン、テトラヒドロフランやピラン等の環状エーテル系、メチルエチルケトン等のケトン系の溶剤も使用可能である。これら溶剤は相互に混合して用いることもでき、また、アルコール等の非溶剤を混合して、溶剤の蒸発速度を制御することも、表面性の優れたフィルムを得るためには好ましい方法である。

#### 【0043】

溶液流延法によりフィルム化する場合、本発明の樹脂（A）および樹脂（B）を前記溶剤に溶解したのち、支持体に流延し、乾燥してフィルムとする。好ましい支持体としては、ステンレス鋼のエンドレスベルトや、ポリイミドフィルムや二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム等のようなフィルムを用いることができる。

#### 【0044】

必要に応じて、予備乾燥したフィルムを支持体から剥離し、さらに乾燥することもできる。フィルムの乾燥は、一般には、フロート法や、テンターあるいはロール搬送法が利用できる。フロート法の場合、フィルム自体が複雑な応力を受け、光学的特性の不均一が生じやすい。また、テンター法の場合、フィルム両端を支えているピンあるいはクリップの距離により、溶剤乾燥に伴うフィルムの幅収縮と自重を支えるための張力を均衡させる必要があり、複雑な幅の拡張制御を行う必要がある。一方、ロール搬送法の場合、安定なフィルム搬送のためのテンションは原則的にフィルムの流れ方向（MD方向）にかかるため、応力の方向を一

定にしやすい特徴を有する。従って、フィルムの乾燥は、ロール搬送法によることが最も好ましい。

【0045】

本発明のフィルム厚みは、通常、 $30\mu\text{m}$ から $150\mu\text{m}$ であり、好ましくは $50\mu\text{m}$ から $120\mu\text{m}$ である。また、フィルムの位相差値は、 $20\text{nm}$ 以下が好ましく、より好ましくは $10\text{nm}$ 以下である。フィルムの位相差値がこれ以上大きいと、延伸して位相差フィルムとした際に位相差値のフィルム面内バラツキが大きくなるので好ましくない。

【0046】

またフィルム化の際に、必要に応じて少量の可塑剤や熱安定剤、紫外線安定剤等の添加剤を加えても良い。特に熱可塑性樹脂(A)のイミド含有率が40モル%以上と高い場合、得られるフィルムは硬く脆くなる傾向にあるため、フィルムの応力白化や裂けを防止する目的で可塑剤を加えることは有効である。

【0047】

好ましい可塑剤を例示すると、フタル酸系可塑剤としては、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジ-n-ブチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-エチルヘキシル、フタル酸ジイソオクチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-デシル、フタル酸ジイソデシル、フタル酸ジ-n-ドデシル、フタル酸ジイソトリデシル、フタル酸ジシクロヘキシル、フタル酸ブチルベンジル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、イソフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、脂肪族二塩基酸系可塑剤としては、アジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸エステル系可塑剤としては、リン酸トリブチル、リン酸トリ-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジル、エポキシ系可塑剤としては、エポキシ化大豆油、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、脂肪酸エステル系可塑剤としては、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、高分子系可塑剤としては、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、ポリエチレングリコール安息香酸エステル、

エステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸、フタル酸等の二塩基酸と 1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール等の重縮合物）等が挙げられる。これら可塑剤の中でも、芳香族基を含まない可塑剤、例えばアジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸トリブチル、リン酸トリ-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジル、エポキシ化大豆油、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、あるいはエステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸等の二塩基酸と 1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール等の重縮合物）等の可塑剤が好ましい。

## 【0048】

これらの可塑剤は、可視領域短波長側に吸収を持たないため、位相差の波長依存性に悪影響を与えないため、特に好ましい添加剤である。これら可塑剤は本発明のフィルム 100 重量部に対して 2~20 重量部添加される。20 重量部を超えると、連続的にロールフィルムを延伸する際の位相差値の安定性が損なわれるおそれがあるため、好ましくない。

## 【0049】

位相差フィルムを得るためには、上記で得られたフィルムを公知の延伸方法により少なくとも一軸延伸して配向処理を行い、均一な位相差を付与することができる。延伸方法としては、一軸や二軸の熱延伸法を採用することができる。本発明の光学フィルムは、延伸時に位相差が発現しにくく、従来のポリカーボネートと異なり、大きな延伸倍率を取る必要があるため、縦一軸延伸が好ましい。また、得られた位相差フィルムの光学的な一軸性が重要となる場合は、自由端縦一軸延伸が特に好ましい延伸方法である。また、特開平 5-157911 号公報に示されるような特殊な二軸延伸を施し、フィルムの三次元での屈折率を制御することも可能である。

## 【0050】

得られた位相差フィルムの位相差値は  $10\text{ nm} \sim 2000\text{ nm}$  の間で、目的に応じて選択することができる。位相差値は、延伸温度や延伸倍率を制御することにより所望の値にすることができる。一般には、延伸倍率は 1.1 倍から 3 倍であり、延伸温度は、ガラス転移温度  $T_g$  に対して、 $(T_g - 30)^\circ\text{C}$  から  $(T_g + 30)^\circ\text{C}$  までの範囲で選択される。特に好ましい延伸温度は、 $(T_g - 20)^\circ\text{C}$  から  $(T_g + 20)^\circ\text{C}$  までの範囲である。この温度範囲とすることにより、延伸時のフィルム白化を防止でき、また、得られた位相差フィルムの位相差バラツキを小さくすることができる。

## 【0051】

本発明の位相差フィルムを STN 液晶表示装置の色補償用に用いる場合には、その位相差値は、一般的には、 $400\text{ nm}$  から  $2000\text{ nm}$  までの範囲で選択される。また、本発明の位相差フィルムを  $\lambda/2$  波長板として用いる場合は、その位相差値は、 $200\text{ nm}$  から  $400\text{ nm}$  の範囲で選択される。本発明の位相差フィルムを  $\lambda/4$  波長板として用いる場合は、その位相差値は、 $90\text{ nm}$  から  $200\text{ nm}$  までの範囲で選択される。 $\lambda/4$  波長板としてのより好ましい位相差値は、 $100\text{ nm}$  から  $180\text{ nm}$  までである。

## 【0052】

本発明の位相差フィルムは、必要によりフィルムの片面あるいは両面にコロナ処理やプラズマ処理等の表面処理を行うことができる。特に、フィルム表面にコーティング加工等の表面処理が施される場合や、粘着剤により別のフィルムがラミネートされる場合は、相互の密着性を上げるための手段として、フィルム表面のコロナ処理は好適な方法である。好ましいコロナ処理の程度は、 $54\text{ dyn/cm}$  以上である。

## 【0053】

本発明の位相差フィルムは、公知のヨウ素系あるいは染料系の偏光板と粘着剤を介して積層貼合することができる。積層する際、用途によって偏光板の偏光軸と位相差フィルムの遅相軸とを、特定の角度に保って積層することが必要である。本発明の位相差フィルムを  $1/4$  波長板とし、これを偏光板と積層貼合して円偏光板として用いることができる。その場合、一般には、偏光板の偏光軸と位相

差フィルムの遅相軸は実質的に $45^{\circ}$ の相対角度を保ち積層される。また、本発明の位相差フィルムを、偏光板を構成する偏光保護フィルムとして用いて積層してもかまわない。さらに、本発明の位相差フィルムをSTN液晶表示装置の色補償板とし、これを偏光板と積層貼合することにより楕円偏光板として用いることができる。

## 【0054】

本発明の位相差フィルムの表面には、必要に応じハードコート層等のコーティング層を形成することができる。

## 【0055】

また、本発明の位相差フィルムは、コーティング層を介して、または介さずに、スパッタリング法等によりインジウムスズ酸化物系等の透明導電層を形成し、液晶表示装置の電極基板やタッチパネルの電極基板として用いることもできる。なお、コーティング層は厚み $0.1\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ まで、好ましくは $1\mu\text{m}$ から $5\mu\text{m}$ までの範囲で形成することが好ましい。

## 【0056】

好ましいコーティング層を例示すると、有機系コーティング層としては、メラミン樹脂系、アクリル樹脂系、ウレタン樹脂系、アルキド樹脂系または含フッ素系樹脂系があり、また有機-シリコン複合系としては、ポリエステルポリオールやエーテル化メチロールメラミンにアルキルトリアルコキシシラン、テトラアルコキシシランの部分加水分解物を配合したものが挙げられる。また、アミノシランやエポキシシランの部分加水分解物、シランカップリング剤とアルキルトリアルコキシシラン・テトラアルコキシシランの部分加水分解物、コロイダルシリカとアルキルトリアルコキシシランの加水分解物等のシリコン系材料も好適に用いることができる。

## 【0057】

これらコーティング材料を本発明の位相差フィルムの片面または両面にコーティング後、熱硬化により耐溶剤性皮膜を有するフィルムを得ることができる。このとき、低温硬化型の触媒を同時に用いることは、好ましくないフィルムの熱変性を抑制するために好ましい方法である。また多官能アクリレート等のモノマー

やオリゴマーに光増感剤を添加し、紫外線や電子線により得られる硬化層も好適に用いることができる。これらのコーティング層には、必要により、各種フィラーを添加することができる。透明導電層を有する本発明の位相差フィルムを抵抗膜式タッチパネルの電極フィルムとして用いた場合、フィラーを添加することにより透明電極間での光の干渉による好ましくないニュートンリングの発生や、透明導電基板同士のブロッキングを防止することができる。好ましいフィラーとしては、ポリメタクリル酸エステル系やポリアクリル酸エステル系、ポリオレフィン系、ポリスチレン系、ジビニルベンゼン系、ベンゾグアナミン系、有機シリコン系等の有機系フィラーあるいはシリカやアルミナ、酸化チタン等の無機系フィラーが使用可能である。一方、フィラーの添加により表示像のギラツキ感を与えることがあり、フィラー形状、コーティング剤やコーティング条件の最適化により、透過像鮮明度を 80 % 以上にすることが望ましい。

【0058】

#### 【実施例】

実施例および比較例に示される各物性値の測定方法を以下に示す。

【0059】

＜Re 値の測定および波長依存性の評価＞

①オーク製作所（株）の顕微偏光分光光度計（TFM-120AFT）を用い、441.6nm、514.5nm、632.8nm および 780nm の波長における各 Re 値を回転検光子法で測定する。

【0060】

②上記データを用い、経験式  $Re = a + b / (\lambda^2 - c)$  [Re、 $\lambda$  はそれぞれ測定位相差と測定波長を示す。a、b、c は定数] の各定数を最小自乗法により決定する。

【0061】

③得られた経験式をもとに、400nm における Re 値 ( $Re(400)$ ) と 550nm における Re ( $Re(550)$ ) 値を計算する。

【0062】

④計算した Re 値から  $Re(400) / Re(550)$  を計算し、この値を波

長依存性の指標とする。

【0063】

＜光線透過率の測定方法＞

JIS K7105-1981の5.5記載の方法により測定した。

【0064】

＜ヘイズの測定方法＞

JIS K7105-1981の6.4記載の方法により測定した。

【0065】

＜光弾性係数＞

フィルムの複屈折は顕微偏光分光光度計（オーク製作所製 TFM-120A FT-PC）により測定した。光軸方向に幅1cmの短冊に切断したフィルム的一方を固定し、他方に50g、100g、150gの加重をかけ、単位応力による複屈折率の変化量を算出する。

【0066】

以下実施例により本発明を説明する。

【0067】

実施例1

イソブテンとN-メチルマレイミドから成る交互共重合体（N-メチルマレイミド含量50モル%、ガラス転移温度157℃）100重量部と、スチレン含量が38モル%であるスチレンとアクリロニトリルからなる共重合体10重量部を、塩化メチレンに固形分濃度15重量%になるように溶解し、ガラス板上に敷いた二軸延伸PETフィルム上に流延し室温で60分放置した。その後フィルムを剥し、4片固定治具に挟んで、100℃で10分間、さらに140℃で10分間乾燥を行って厚さ約100 $\mu$ mのフィルムを得た。このフィルムの位相差値は8nm、光線透過率は92%、ヘイズは0.3%であった。

【0068】

このフィルムから30cm $\times$ 10cmのサンプルフィルムを切り取り、延伸試験装置（東洋精機製作所、X4HD-HT）を用いて延伸速度10cm/分、延伸倍率1.5倍、延伸温度140℃の条件でサンプルフィルムの長手方向へ自由



端縦一軸で延伸し、リターデーション 1 4 3 nm (測定波長 5 5 0 nm) の位相差フィルムを得た。この位相差フィルムの波長依存性を評価するために  $Re(400)/Re(550)$  を計算したところ 1. 0 9 であった。また、この位相差フィルムの光弾性係数は  $6 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 / \text{dyn}$  であった。

【0 0 6 9】

#### 実施例 2

実施例 1 で得られたフィルムを用い、3 0 cm × 1 0 cm のサンプルフィルムを切り取り、実施例 1 と同様にして、延伸倍率 1. 9 倍、延伸温度 1 4 0 °C の条件でサンプルフィルムの長手方向へ自由端縦一軸で延伸し、リターデーション 2 6 0 nm (測定波長 5 5 0 nm) の位相差フィルムを得た。この位相差フィルムの波長依存性を評価するために  $Re(400)/Re(550)$  を計算したところ、1. 0 9 であった。

【0 0 7 0】

#### 実施例 3

実施例 1 で用いたイソブテンと N-メチルマレイミドから成る交互共重合体 1 0 0 重量部と、スチレン含量が 4 2 モル%であるスチレンとアクリロニトリルからなる共重合体 1 0 重量部を、塩化メチレン溶液に固形分濃度 1 5 重量%になるように溶解し、ガラス板上に敷いた二軸延伸 PET フィルム上に流延し室温で 6 0 分放置した。その後フィルムを剥し、4 片固定治具に挟んで、1 0 0 °C で 1 0 分間、さらに 1 4 0 °C で 1 0 分間乾燥を行って厚さ約 1 0 0  $\mu\text{m}$  のフィルムを得た。このフィルムの位相差値は 5 nm、光線透過率は 9 2 %、ヘイズは 0. 5 % であった。

【0 0 7 1】

このフィルムを実施例 1 と同様にして、延伸倍率 1. 5 倍、延伸温度 1 5 0 °C の条件でサンプルフィルムの長手方向へ自由端縦一軸で延伸し、リターデーション 1 3 8 nm (測定波長 5 5 0 nm) の位相差フィルムを得た。この位相差フィルムの波長依存性を評価するために  $Re(400)/Re(550)$  を計算したところ、1. 0 7 であった。また、この位相差フィルムの光弾性係数は  $6 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 / \text{dyn}$  であった。

## 【0072】

(比較例1) ビスフェノール成分としてビスフェノールAからなるポリカーボネート(帝人化成株式会社 C-1400、ガラス転移温度149℃)を塩化メチレン溶液に濃度15重量%になるように溶解し、ガラス板上に流延し室温で60分放置後フィルムを剥し、4片固定治具に挟んで、100℃で10分間、さらに120℃で10分間乾燥を行って厚さ約80 $\mu$ mのフィルムを得た。このフィルムの位相差値は21nm、光線透過率は90%、ヘイズは0.3%であった。

## 【0073】

このフィルムから30cm $\times$ 10cmのサンプルフィルムを切り取り、延伸試験装置(東洋精機製作所、X4HD-HT)を用いて延伸速度10cm/分、延伸倍率1.1倍、延伸温度165℃の条件で延伸し、リターデーション250nm(測定波長550nm)の位相差フィルムを得た。この位相差フィルムの波長依存性を評価するために $Re(400)/Re(550)$ を計算したところ、1.16であった。

## 【0074】

## 実施例5

実施例1で得られた位相差フィルムにコロナ処理を行ったところ、コロナ処理面の塗れ性は56dyn/cmであった。アクリル系粘着剤を用い、偏光板の偏光軸とコロナ処理済み位相差フィルムの遅相軸を45°に配し積層貼合し円偏光板を得た。この円偏光板を温度40℃、湿度95%の湿熱環境下に長期放置しても、偏光板と位相差フィルムとの界面で剥離は認められなかった。

## 【0075】

## 【発明の効果】

以上述べたように本発明の光学フィルムは、特定の構造を有する少なくとも2種の樹脂(重合体)を含有していることにより、光学特性に優れている。特に本発明の光学フィルムは、位相差の波長依存性が小さく、張力による位相差ズレが小さい位相差フィルムを提供する。さらに、本発明の位相差フィルムを、反射型TFT液晶表示装置の構成フィルムとして用いると、色純度の高い表示像を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】位相差の波長依存性が小さく、かつ応力に対して位相差変化の小さい位相差フィルムを製造し得る光学フィルムを提供する。

【解決手段】（A）側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および（B）側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する光学フィルム。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000941]

1. 変更新月日	1990年 8月27日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号
氏 名	鐘淵化学工業株式会社